

# PATENT ABSTRACTS OF JAPAN

(11)Publication number : 61-207546

(43)Date of publication of application : 13.09.1986

(51)Int.Cl. C22C 33/02  
// C22C 38/00

(21)Application number : 60-047358 (71)Applicant : TOHOKU METAL IND LTD

(22)Date of filing : 12.03.1985 (72)Inventor : OTSUKA TSUTOMU  
SATO TADAKUNI

## (54) MANUFACTURE OF MAGNET CONTAINING RARE EARTH ELEMENT

### (57)Abstract:

**PURPOSE:** To remarkably improve the characteristics of a magnet by sintering a green compact of a mixture of rare earth element-transition metal-B alloy powder having a higher rare earth element content than the resulting magnet with rare earth element-transition metal-B alloy powder having a lower rare earth element content than the magnet.

**CONSTITUTION:** An R2T14B type magnet contg. a rare earth element (R), a transition metal (T) and B as the principal components is manufactured by compacting R-T-B alloy powder contg. a prescribed wt% of R in a magnetic field and by sintering the green compact. At this time, the R-T-B alloy powder is prepd. by mixing the 1st R-T-B alloy powder obtd. by crushing the 1st R-T-B alloy ingot contg. more than the prescribed wt% of R with the 2nd R-T-B alloy powder obtd. by crushing the 2nd R-T-B alloy ingot contg. less than the prescribed wt% of R so that the mixture contains the prescribed wt% of R.

## LEGAL STATUS

[Date of request for examination]

[Date of sending the examiner's decision  
of rejection]

[Kind of final disposal of application  
other than the examiner's decision of  
rejection or application converted  
registration]

[Date of final disposal for application]

[Patent number]

[Date of registration]

[Number of appeal against examiner's  
decision of rejection]

[Date of requesting appeal against  
examiner's decision of rejection]

71

⑨ 日本国特許庁(JP)

⑩ 特許出願公開

⑫ 公開特許公報(A)

昭61-207546

⑪ Int.Cl.<sup>4</sup>  
C 22 C 33/02  
// C 22 C 38/00

識別記号

庁内整理番号

⑬ 公開 昭和61年(1986)9月13日

7511-4K

7619-4K

審査請求 未請求 発明の数 1 (全6頁)

⑭ 発明の名称 希土類磁石の製造方法

⑮ 特 願 昭60-47358

⑯ 出 願 昭60(1985)3月12日

⑰ 発 明 者 大 塚 努 仙台市郡山6丁目7番1号 東北金属工業株式会社内  
⑱ 発 明 者 佐 藤 忠 邦 仙台市郡山6丁目7番1号 東北金属工業株式会社内  
⑲ 出 願 人 東北金属工業株式会社 仙台市郡山6丁目7番1号  
⑳ 代 理 人 弁理士 芦 田 坦 外2名

明 細 書

1. 発明の名称

希土類磁石の製造方法

2. 特許請求の範囲

1. 希土類元素(R)、遷移金属(T)、ホウ素(B)を主成分とする $R_2T_{14}B$ 系磁石を、前記希土類元素(R)の含有量が所定重量パーセントのR-T-B系合金粉末を磁場中で成形した後焼結して製造する方法において、前記R-T-B系合金粉末として、前記希土類元素(R)の含有量が前記所定重量パーセントを超える第1のR-T-B系インゴットを粉砕して得られる第1のR-T-B系合金粉末と前記希土類元素(R)の含有量が前記所定重量パーセント未満なる第2のR-T-B系インゴットを粉砕して得られる第2のR-T-B系合金粉末とを混合して全体としての前記希土類元素(R)の含有量を前記所定重量パーセントとしたものを用いることを特徴とする希土類磁石の製造方法。

(1)

2. 前記遷移金属(T)が鉄(Fe)である特許請求の範囲第1項記載の希土類磁石の製造方法。

3. 前記希土類元素(R)がネオジム(Nd)である特許請求の範囲第2項記載の希土類磁石の製造方法。

4. 前記所定重量パーセントが34重量パーセントである特許請求の範囲第3項記載の希土類磁石の製造方法。

5. 前記第1のR-T-B系合金粉末の希土類元素(R)の含有量が36乃至57重量パーセントの範囲にある特許請求の範囲第4項記載の希土類磁石の製造方法。

6. 前記第1のR-T-B系合金粉末の混合の割合が、0乃至50重量パーセント(但し、0及び50を含まず)の範囲にある特許請求の範囲第5項記載の希土類磁石の製造方法。

7. 前記希土類元素(R)がイットリウム(Y)である特許請求の範囲第2項記載の希土類磁石の製造方法。

以下余白

(2)

特開昭61-207546 (2)

## 3. 発明の詳細な説明

## 〔産業上の利用分野〕

本発明は、希土類元素(R)、遷移金属(T)、ホウ素(B)を主成分とする $R_2T_{14}B$ 系金属間化合物磁石(希土類磁石)の製造方法に関し、特に、希土類元素(R)がネオジム(Nd)、遷移金属(T)が鉄(Fe)なる $Nd_2Fe_{14}B$ 系磁石を粉末冶金法により製造する方法の改良に関するものである。

## 〔従来の技術〕

従来、この種の $R_2T_{14}B$ 系磁石の粉末冶金法による製造工程は、第2図のフローに示されるように、原料秤量(ステップ1')、溶解(ステップ2')、粉砕(ステップ3')、磁場中配向及び圧縮成形(ステップ5')、焼結(ステップ6')及び熱処理(ステップ7')の順に進められる。原料秤量は、例えば $Nd_2Fe_{14}B$ 系磁石を製造する場合、Ndの含有量が34重量パーセント(以下、wt%と略す)、Bの含有量が1wt%、残部がFe(以下、Fe-balと略す)とする。溶解は真空あるいは不活性雰囲気中でアーク又は高周波加熱によって行われる。

(3)

も、最大エネルギー積 $\left\{ \frac{(BH)_{max}}{(BH)_{max}} \right\}$ を改善することができない。

この結果、従来の粉末冶金法による $R_2Fe_{14}B$ 系磁石では、工業的に製造して得られる最良の磁石特性は、 $Br=1.22 \text{ KGauss}$ 、 $H_0=6\sim7 \text{ KOe}$ 、 $(BH)_{max} \div 3.5 \text{ MGauss} \cdot \text{Oe}$ 程度がせいぜいであった。

## 〔問題点を解決するための手段及び作用〕

本発明は、異なる組成の合金粉末を混合した成形体を焼結する方法により高い磁石特性を得ることを特徴としている。すなわち、 $R_2T_{14}B$ を主生成相とするR-T-B系合金粉末に、この合金粉末よりもRの含有率が高く融点の低いR-T-B系合金粉末を混合して成形した後、焼結することにより著しい磁石特性の向上が実現されるものである。このように、低融点であるR-T-B系合金粉末を混合することにより、焼結温度を低下させ、残留磁束密度(Br)を減少せずに保磁力( $H_0$ )の向上が実現され、磁石特性の高い焼結体を得られる。

(5)

粉砕は粗粉砕と微粉砕にわけられ、粗粉砕はジョークラッシャー、鉄乳鉢やロールミル等で行われる。微粉砕はボールミル、振動ミル、ジェットミル等で行われる。磁場中配向及び圧縮成形は金型を用いて磁場中で同時に行われる。焼結は $1000\sim1150^\circ\text{C}$ の範囲で、不活性雰囲気又は真空中で行われる。熱処理は必要に応じ $300\sim900^\circ\text{C}$ 程度の温度で行われる。なお、このようにして焼結して製造される焼結型磁石に関する文献として、特開昭59-46008や日本応用磁気学会第35回研究会資料(昭和59年5月)があげられる。

## 〔発明が解決しようとする問題点〕

このような従来法では、焼結性を促進するためには比較的高い温度 $1070\sim1080^\circ\text{C}$ での焼結が必要とされた。ところが、焼結温度を高めると結晶成長し、残留磁束密度(Br)は増大するが、保磁力( $H_0$ )及び減磁特性の角型性が低下してしまう。逆に、焼結温度を低下させると、保磁力( $H_0$ )及び減磁特性の角型性が向上するが、残留磁束密度(Br)が低下してしまう。いずれにして

(4)

## 〔実施例〕

以下本発明について実施例に基づいて説明する。

## (I) 実施例1

純度95%以上のFe, Nd, Bを使用し、アルゴン雰囲気中で高周波加熱により、Nd組成値が32~57wt%(Bは1wt% Fe-bal)を有する12種類のインゴットを得た。次にこれらインゴットを粗粉砕した。

これら粗粉末のうち、合金組成34wt% Nd-1.1wt% B-Fe-balよりもNd組成値の高い粗粉末(以下高Nd合金粉末と称す)、すなわち36wt% Nd, 39wt% Nd, 45wt% Nd, 49wt% Nd, 53wt% Nd, 57wt% Nd(いずれも1wt% B-Fe-bal)を用い、この6種類の粉末を1材とした。また残り6種類の33.8wt% Nd, 33.6wt% Nd, 32.7wt% Nd, 32.3wt% Nd, 32wt% Nd(いずれも1wt% B-Fe-bal)をⅡ材とした。

そして、上記した6種類のⅠ材の粉末は、配合重量で8wt%とし、残部92wt%のⅡ材の粉末と配合し、合金組成34wt% Nd-1wt% B-Fe-balとなるよう

(6)

特開昭61-207546(3)

混合した。

また、比較のために上記と同様の方法で、磁石組成34wt%Nd-1wt%B-Fe-balのインゴットを得て、粗粉碎した。

次にボールミルで平均粒径3~5 $\mu$ mに湿式粉碎した。これら粉末を、10KOeの磁界中1.0ton/cm<sup>2</sup>の圧力で成形した。これら圧粉体を、1050~1100℃で2時間Ar中焼結し、100℃/時間以下の冷却速度で、徐冷した。その後これら焼結体を550℃で1時間加熱した後、急冷した。

第1図は本発明による製造工程のフローを示した図である。すなわち、Nd組成値が34wt%よりも高くなるように秤量し(ステップ1a)、溶解し(ステップ2a)、粉碎し(ステップ3a)で、I材を得る。と同時に、上記工程とは独立に、Nd組成値が34wt%未満となるように秤量し(ステップ1b)、溶解し(ステップ2b)、粉碎し(ステップ3b)で、II材を得る。これらI材とII材をNd組成値が34wt%となるように混合する(ステップ4)。その後は、従来同様、磁場中配向及

(7)

100℃/時間以下の冷却速度で徐冷した。これら試料を550℃で1時間加熱した後、急冷した。

第4図に焼結温度を変化させ得られた焼結体の中で、最も高い磁気特性を示す。図において、(a)は最大エネルギー積( $(BH)_{max}$ )、(b)は残留磁束密度(Br)、(c)は保磁力( $H_c$ )である。この図から明らかなように、45wt%Nd-1wt%B-Fe-bal合金粉末の混合量が、0~50wt%(但し、0及び50を含まず)の間で、磁石特性の向上が認められる。

又、本発明の製造方法によって製造した磁石と従来の製造方法によって製造した磁石を比較するために、これらの顕微鏡によって6000倍に拡大した金属組織の写真を、それぞれ第5図、第6図に示した。これらの写真において、黒色がNd rich相、白色に近い色がFe rich相、灰色がBrich相を示している。これらの写真より明らかなように、従来法によるもの(第6図)は、結晶粒界が僅めではっきりしているのに対して、本発明によるもの(第5図)は、Brich相がFe rich相あるいは

(9)

び圧縮成形(ステップ5)、焼結(ステップ6)、熱処理(ステップ7)が順次行われる。

第3図は、I材とII材の組成値と焼結温度を変化させて得られた焼結体の中で、最も高い磁石特性を示す。この図から明かなように、従来の方法で、磁石組成34wt%Nd-1wt%B-Fe-bal一種のインゴットから得られた焼結体に比べ、本発明の方法により、低Nd合金粉末と高Nd合金粉末とを混合して得られた焼結体の方が、磁石特性の向上が認められる。

(ii)実施例2

実施例1で得られた45wt%Nd-1wt%B-Fe-balの組成を有するNd<sub>2</sub>Fe<sub>14</sub>Bを主生成相とする粉末を、0~50wt%まで実施例1と同様の方法で得られた24~34wt%Nd(B1wt%, Fe-bal)の粉末と混合し、最終的には34wt%Nd-1wt%B-Fe-balとする粉末を同様に用意した。この混合粉末を、実施例1と同様にして圧粉体を得た。これら圧粉体を1050~1100℃で1時間真空中で保持した後、1時間Ar中で焼結した。その後

(8)

Nd rich相の粒界をなめらかに拡散している。

本発明において、混合する2つの合金粉末のうち、Ndの含有量が34wt%を超えるNd-Fe-B系合金粉末(I材)は融点が低く、そのため、十分に解明されていないが、結晶成長をやや低い温度で焼結を完了する。従って、残留磁束密度(Br)が向上する。また、Ndの含有量が34wt%未満であるNd-Fe-B系合金粉末(II材)はI材をフラックスとして(液相)結晶成長はとげるものの、ある程度以上にはならず抑制される。従って、保持力( $H_c$ )が大きくなる。

なお、上記実施例では、R<sub>2</sub>T<sub>14</sub>B系磁石として、Nd<sub>2</sub>Fe<sub>14</sub>B系磁石の場合についてのみ述べたが、希土類元素(R)としてNd以外の他の希土類元素、例えばイットリウム(Y)のR<sub>2</sub>Fe<sub>14</sub>B系磁石においても、本発明による製造方法により、磁石特性の向上が期待できることが容易に推察される。

(発明の効果)

以上説明したように、本発明によれば、R<sub>2</sub>T<sub>14</sub>B系磁石の粉末冶金法による製造方法において、

(10)

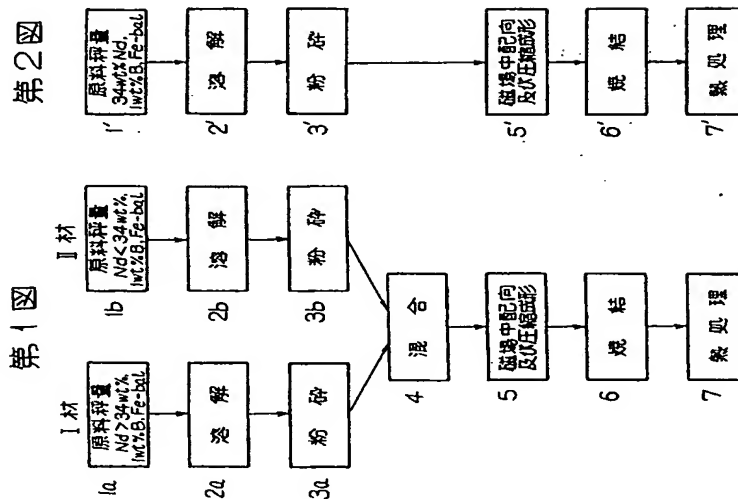
特開昭61-207546(4)

R-T-B系合金粉末に、その磁石組成よりも高いR組成で低融点であるR-T-B系合金粉末を、混合分散させた成形体を焼結することにより、著しい磁石特性の向上が実現できる。

#### 4. 図面の簡単な説明

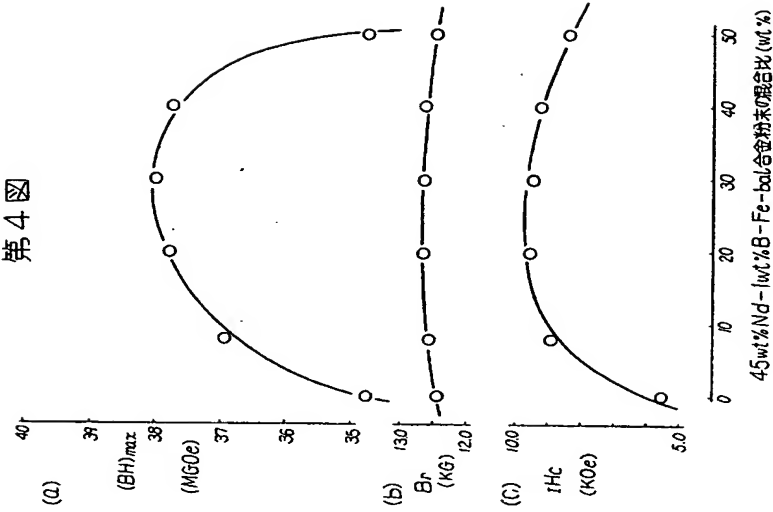
第1図は本発明による製造工程のフローを示した図、第2図は従来の製造工程のフローを示した図、第3図は実施例1における高Nd合金粉末(I材)と低Nd合金粉末(II材)の組成値と焼結温度を変化させた時に得られた最も高い磁石特性との関係を示した図、第4図は実施例2における $\text{Nd}_2\text{Fe}_{14}\text{B}$ を主生成相とするNd-Fe-B合金粉末に対する、45wt%Nd-1wt%B-Fe-bal合金粉末の混合比と、焼結温度を変化させた時に得られた最も高い磁石特性との関係を示した図、第5図は本発明の製造方法によって製造した磁石を顕微鏡によって600倍に拡大した金属組織の写真、第6図は従来法によるものの同様の写真である。

代理人 (7783) 弁理士 池田 憲保  
(11)



特開昭61-207546 (5)

第4図

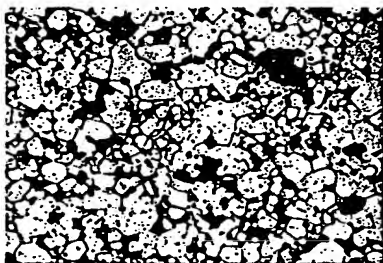


第3図

I材とII材のNd組成値 (wt%) (B=1wt%, Fe-bal)			配合Nd組成値 (wt%)		磁石特性		
I材	II材		34wt%Nd (B=1wt% (Fe-bal)	Br (Kor)	(BH) <sub>max</sub> (MGc)	iHc (Koe)	
36	33.8			12.4	35.2	7.2	
I材	II材	39	34wt%Nd (B=1wt% (Fe-bal) <td>12.5</td> <td>36.5</td> <td>9.0</td>	12.5	36.5	9.0	
33.6				12.5	36.8	9.6	
I材	II材	45	34wt%Nd (B=1wt% (Fe-bal) <td>12.5</td> <td>36.7</td> <td>9.4</td>	12.5	36.7	9.4	
33				12.4	36.2	8.5	
I材	II材	49	34wt%Nd (B=1wt% (Fe-bal) <td>12.3</td> <td>35.0</td> <td>7.5</td>	12.3	35.0	7.5	
32.7				12.3	34.8	6.8	
I材	II材	53	34wt%Nd (B=1wt% (Fe-bal) <td></td> <td></td> <td></td>				
32.3							
I材	II材	57	34wt%Nd (B=1wt% (Fe-bal) <td></td> <td></td> <td></td>				
32							
磁石組成 34wt%-1wt%B-Fe-bal のインジウムが得られた焼結体				12.3	34.8	6.8	

特開昭 61-207546 (6)

第 5 図



第 6 図

